Zirconium alloy nuclear fuel cladding production

Patent Number:

FR2769637

Publication date:

1999-04-16

Inventor(s):

ISOBE TAKESHI; SUDA YOSHITAKA

Applicant(s)::

MITSUBISHI MATERIALS CORP (JP)

Requested Patent:

FR2769637

Application Number: FR19980012784 19981013

Priority Number(s): JP19970278935 19971013; JP19980287800 19981009

IPC Classification:

C21D8/00; C21D1/26; G21C3/07

EC Classification:

G21C3/07

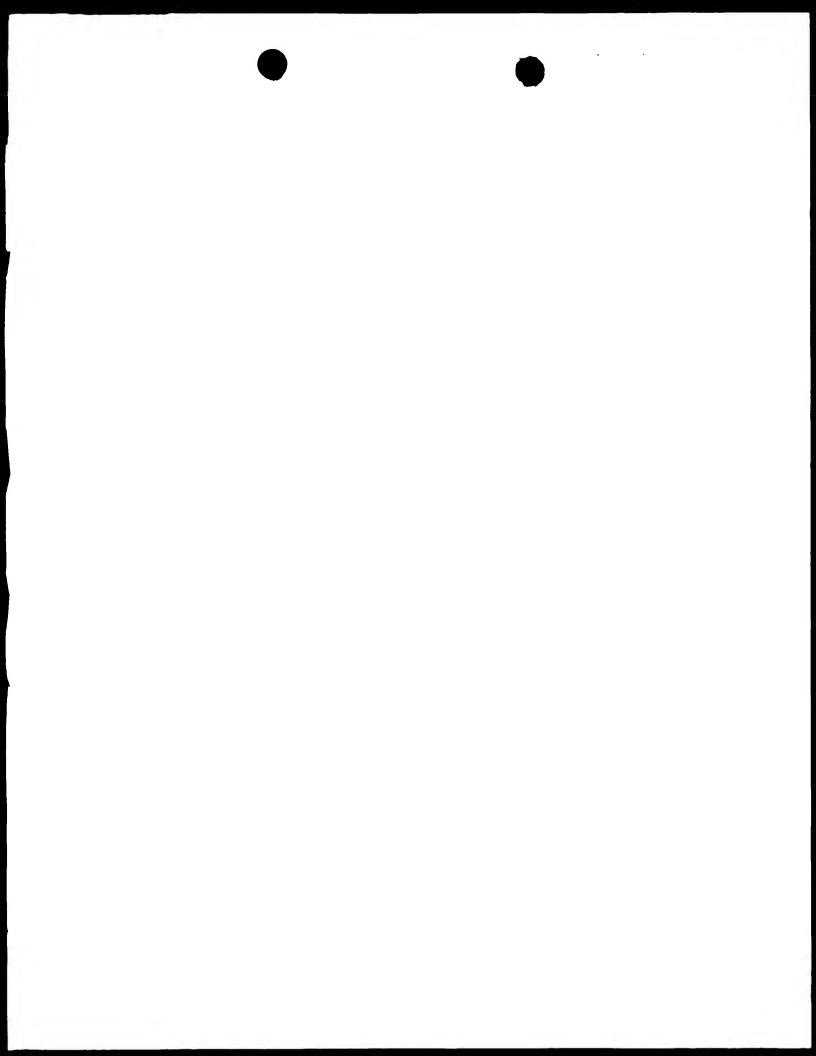
Equivalents:

☐ JP11194189

Abstract

In the production of nuclear fuel cladding of a zirconium alloy containing Nb or Nb+Ta, annealing is carried out at 550-850 deg C for 1-4 h such that the log of the cumulative anneal parameter is -20 to -15 and satisfies a mathematical relationship relating it to the Nb or Nb+Ta content. Nuclear fuel cladding is produced by subjecting a zirconium alloy of composition (by wt.) 0.2-1.7% Sn, 0.18-0.6% Fe, 0.07-0.4% Cr, 0.05-1.0% Nb, optionally 0.01-0.1% Ta, balance zirconium and impurities, including <= 60 ppm N, to hot forging, solution heat treatment, hot extrusion, repeated annealing and cold rolling, and final stress relief annealing, the annealing being carried out at 550-850 deg C for 1-4 h such that the cumulative anneal parameter \=SAi (where \=SAi = \=Sti asterisk exp(-40000/Ti)) satisfies the relationships of log\=SAi = -20 to -15 and log\=SAi = -18-10XNb to -15-3.75(XNb-0.2), <#s> in which Ai = anneal parameter for the 'i'th anneal, ti = anneal duration (h) for the 'i'th anneal, Ti = the anneal temperature (K) for the 'i'th anneal and XNb = the Nb and optional Ta content (in wt.%). An Independent claim is also included for a zirconium alloy nuclear fuel cladding made by the above process.

Data supplied from the esp@cenet database - I2



INSTITUT NATIONAL DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

(11) No de publication :

2 769 637

(à n'utiliser que pour les commandes de reproduction)

(21) Nº d'enregistrement national :

98 12784

(51) Int Cl6: C 21 D 8/00, C 21 D 1/26. G 21 C 3/07

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

Date de dépôt : 13.10.98.

Priorité: 13.10.97 JP 27893597: 09.10.98 JP 28780098.

(71) Demandeur(s) : MITSUBISHI MATERIALS CORP —

Date de mise à la disposition du public de la demande: 16.04.99 Bulletin 99/15.

Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : Ce dernier n'a pas éte établi à la date de publication de la demande.

(50) Références à d'autres documents nationaux apparentés :

Inventeur(s): ISOBE TAKESHI et SUDA YOSHI-TAKA.

(73) Titulaire(s) :

(74) Mandataire(s): REGIMBEAU.

PROCEDE POUR FABRIQUER UN ALLIAGE DE ZIRCONIUM POUR GAINAGE COMBUSTIBLE DE REACTEUR NUCLEAIRE AYANT UNE EXCELLENTE RESISTANCE A LA CORROSION ET DES PROPRIETES DE FLUAGE.

L'invention fournit un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente resistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage. Le procédé consiste à réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud, et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr ayant une composition pondérale de 0, 2 à 1, 7 % de Sn, 0, 18 à 0, 6 % de Fe, 0, 07 à 0, 4 % de Cr, 0, 05 à 1, 0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des conraintes sur celui-ci. Le recuit est réalisé à une température de 550°C à 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé $\Sigma Ai = \Sigma ti$. exp (-40 000/ Ti) satisfait les relations -20 $\leq \log \Sigma Ai \leq -15$, et -18-10. $X_{ND} \leq \log \Sigma Ai \leq -15$. 15-3. 75. (X_{Nt}-0, 2) dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit, ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit. Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids).



田田

CONTEXTE DE L'INVENTION 1. Champ de l'invention

La présente invention a trait à un procédé pour fabriquer un alliage de Zr pour le gainage de combustible de réacteur nucléaire. Le gainage en alliage de Zr possède une excellente résistance à la corrosion lorsqu'on l'expose à de l'eau chaude sous haute pression ou à de la vapeur et il possède d'excellentes propriétés de fluage.

2. Description de la technique apparentée

Un type général de réacteur nucléaire est un réacteur à eau pressurisé (PWR). Un tube de gainage pour un combustible de réacteur de ce type de réacteur est constitué d'un alliage de Zr. Un alliage de Zr typique utilisé dans un tel tube de gainage est le Zircaloy-4 composé de (dans la suite, les pourcentages sont des pourcentages en poids), 1,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,24 % de Fe, 0,07 à 0,13 % de Cr, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles.

20 On a également proposé pour des tubes de gainage les alliages de Zr contenant Nb ou Nb/Ta ayant une excellente résistance à la corrosion. L'alliage de Zr contenant Nd se compose de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, 25 dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins. L'alliage de Zr contenant Nb/Ta se compose de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, 30 0,01 à 0,1 % de Ta, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins.

La rentabilité d'une centrale nuclaire peut être 35 améliorée en faisant réagir un combustible pendant une longue durée. Ceci demande d'augmenter le temps de

5

10

résistance de tube de gainage de combustible dans les réacteurs. Bien que les tubes de gainage susmentionnés constitués d'alliage de Zr contenant Nd ou contenant Nd/Ta ne possèdent pas une durabilité suffisante pour satisfaire un tel besoin puisque ces alliages ne possèdent pas une résistance à la corrosion et des propriétés de fluage suffisamment élevées. Aussi y-a-t-il un besoin de tubes de gainage pour combustible nucléaire à haute durabilité.

RÉSUMÉ DE L'INVENTION

Les présents inventeurs ont étudié un procédé pour fabriquer un tube de gainage en alliage de Zr pour réacteur nucléaire ayant de combustible résistance à la corrosion et des propriétés de fluage qui sont supérieures à celles des tubes de gainage classiques. Les inventeurs ont découvert qu'on améliore davantage la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage d'un gainage en alliage de Zr obtenu à partir d'un alliage de Zr contenant Nb ou Nb/Ta classique en maîtrisant les conditions du traitement thermique et plus spécifiquement la condition de recuit dans les procédés de fabrication du gainage. Ainsi, le gainage en alliage de Zr résultant peut avoir une longue durée de vie utile.

Un premier aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance en corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes : un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage Zr comprenant en poids de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm

10

15

20

25

30

ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé à une température de 550°C à 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé Σ Ai représenté par Σ Ai= Σ ti.exp (-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb} \le log\Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de 10 recuit pour le ième recuit,

ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 X_{ND} représente la concentration en Nb (% en poids).

Un deuxième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes : réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures d'environ 550°C à environ 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé Σ Ai représenté par Σ Ai= Σ ti.exp (-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb} \le log\Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids); et

10 le paramètre de recuit cumulé ΣAi vérifie de plus les relations:

lorsque $0.05 \le X_{Nb} \le 0.5$,

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb} \le log \Sigma Ai \le -15-10.(X_{Nb}-0.2)$, ou

15 lorsque $0,5 < X_{Nb}$,

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb}-0.5).$

Un troisième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes : réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et de 0,01 à 0,1 % de Ta, le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celuici; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550° C à environ 850° C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé Σ Ai représenté par Σ Ai= Σ ti.exp (-40 000/Ti) satisfait les relations:

20

25

30

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log \Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

5 ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 $X_{\text{Nb+Ta}}$ représente la concentration en Nb et en ^{Ta} 10 (% en poids).

Un quatrième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes de réaliser chaud, un traitement thermique forgeage à solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et de 0,01 à 0,1 % de Ta, le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celuici; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣAi représenté par $\Sigma \text{Ai} = \Sigma \text{ti.exp}$ (-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log \Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

35 ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

15

20

25

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 $X_{\text{ND+Ta}}$ représente la concentration en Nb et Ta (% pp); et

5 le paramètre de recuit cumulé ΣAi vérifie de plus les relations:

lorsque $0.05 \le X_{Nb+Ta} \le 0.5$,

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et X_{Nb+Ta}

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log \Sigma Ai \le -15-10.(X_{Nb+Ta}-0.2)$, et

10 lorsque $0.5 < X_{Nb+Ta}$

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb+Ta}-0.5).$

Dans ces aspects, il est préférable que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures compris entre environ 15 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 minutes suivi par une trempe à l'aide d'argon gazeux.

De plus, dans ces aspects, il est préférable que ces étapes soient effectuées successivement.

Un cinquième aspect de la présente invention est 20 un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, fabriqué à l'aide d'un des procédés décrits ci-dessus.

BRÈVE DESCRIPTION DES DESSINS

25 La figure 1 est graphique qui représente l'intervalle des conditions de recuit d'un procédé pour faire un gainage en alliage de Zr selon la présente invention; et

La figure 2 est graphique qui représente 30 l'intervalle des conditions de recuit d'un procédé pour faire un gainage en alliage de Zr selon la présente invention.

DESCRIPTION DES MODES DE RÉALISATION PRÉFÉRÉS

En général, on produit un gainage en alliage de 35 Zr pour un combustible de réacteur nucléaire à travers des étapes de fusion, de forgeage de lingot, de

traitement thermique en solution, d'extrusion à chaud, de cycles répétés de recuit et de laminage à froid, de recuit avant un laminage à froid final, un laminage à froid final puis un recuit final de relaxation des contraintes.

Le forgeage de lingot est un forgeage à chaud pour décomposer la structure de la coulée et on le réalise dans un intervalle de températures comprises entre environ 800°C et environ 1 100°C. On réalise le 10 traitement thermique en solution en maintenant l'alliage forgé dans l'intervalle de températures comprises entre environ 1 000°C 1 100°C et environ puis refroidissant avec de l'eau de sorte à éliminer une ségrégation microscopique des éléments dans l'alliage. 15 Dans l'extrusion à chaud, on chauffe l'alliage de Zr à une température comprise dans l'intervalle d'environ 600°C à environ 800°C et on l'extrude pour former un sans soudure. On réalise le recuit après l'extrusion à chaud et avant le laminage à 20 ultérieur, généralement dans un four sous vide. réalise généralement le laminage à froid ultérieur à l'aide d'un laminoir à pas de pèlerin dans le cas du gainage en alliage de Zr. Le recuit final de relaxation contraintes s'effectue généralement 25 l'intervalle de températures comprises entre environ 450°C et environ 500°C pendant environ 1 à environ 4 heures de manière à relaxer la contrainte dans le gainage en alliage de 2r.

Le procédé pour fabriquer le gainage en alliage de Zr selon la présente invention se caractérise de la manière suivante. Lorsque l'alliage possède une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, et lorsque la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle est de 60 ppm ou moins, on réalise les recuits après

l'extrusion à chaud et avant le laminage final à froid de manière à satisfaire les conditions décrites dans le premier ou le deuxième aspect susmentionné. Lorsque l'alliage possède une composition (dans la suite en pourcentages pondéraux), de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, 0,01 à 0,1 % de Ta, et que le complément est Zr et des impuretés accidentelles, et lorsque la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle est de 60 ppm ou moins, on réalise les recuits après l'extrusion à chaud et avant le laminage final à froid de manière à satisfaire les conditions décrites dans le troisième ou le quatrième aspect susmentionné.

Le paramètre de recuit cumulé $\Sigma Ai = \Sigma ti.exp$ (-40 000/Ti) doit satisfaire la relation -20 $\leq log\Sigma Ai \leq$ -15. Lorsque -20 $\leq log\Sigma Ai$, le gainage de tuyau en alliage de Zr est complètement recuit par les étapes répétées de recuit. Puisque les étapes de recuit répétés doivent être réalisés dans la région de la phase α -20 zirconium, on doit satisfaire à $log\Sigma Ai \leq -15$.

Le paramètre de recuit cumulé ΣAi est fortement affecté par la concentration en Nb (X_{Nb}) et par la concentration totale en Nb+Ta (X_{Nb+Ta}) . Ainsi, on doit également satisfaire les conditions suivantes:

25 $-18-10.X_{Nb} \leq log\Sigma Ai \leq -15-3,75.(X_{Nb}-0,2) \ pour \\ l'alliage de Zr contenant Nb, ou bien$

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log\Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$ pour l'alliage de Zr contenant Nb/Ta, les concentration X_{Nb} et X_{Nb+Ta} étant représentées en pourcentages pondéraux.

On préfère que le paramètre de recuit cumulé ΣAi pour l'alliage de Zr contenant Nb soit défini en de plus amples détails dans ce qui suit, parce qu'il dépend de manière significative des concentrations X_{Nb} .

 $Lorsque~0,05 \leq X_{Nb} \leq 0,5, \text{ on réalise le recult de} \\ 35 \quad manière à satisfaire les relations:$

 $-20 \le log\Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb} \leq log \Sigma Ai \leq -15-10.(X_{Nb}-0,2) \;, \; ou$ $lorsque \;\; 0,5 \;\; < \;\; X_{Nb}, \;\; on \;\; réalise \;\; le \;\; recuit \;\; de$ manière à satisfaire les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb}-0.5).$

De manière similaire, on préfère que le paramètre de recuit cumulé ΣAi pour l'alliage de Zr contenant Nb/Ta soit défini en de plus amples détails de la manière suivante:

Lorsque 0,5 \leq $X_{Nb+Ta} \leq$ 0,5, on réalise le recuit 10 de manière à satisfaire les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log\Sigma Ai \le -15-10.(X_{Nb+Ta}-0,2)$, ou

lorsque 0,5 < $X_{\text{Nb+Ta}}$, on réalise le recuit de manière à satisfaire les relations:

15 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb+Ta}-0.5).$

La figure 1 est un graphique présentant une gamme de recuits préférés pour produire un gainage en alliage de Zr contenant Nb pour du combustible de réacteur nucléaire. L'alliage de Zr contenant Nb possède une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins. Dans la figure 1, l'axe horizontal logΣAi et indique l'axe vertical indique concentration en Nb (XNb). On fixe les coordonnées des points A, B, C, D, E, F, G, H, et I de la manière suivante:

 $A (\log \Sigma Ai = -15, X_{Nb} = 0,05)$ $B (\log \Sigma Ai = -15, X_{Nb} = 0,2)$ $C (\log \Sigma Ai = -18, X_{Nb} = 1,0)$ $D (\log \Sigma Ai = -20, X_{Nb} = 1,0)$ $E (\log \Sigma Ai = -20, X_{Nb} = 0,2)$ $F (\log \Sigma Ai = -18,5, X_{Nb} = 0,05)$ $G (\log \Sigma Ai = -18, X_{Nb} = 0,5)$

 $H(log\Sigma Ai = -19, X_{ND} = 1,0)$ et

20

 $I(log\Sigma Ai = -20, X_{Nb} = 0,5)$

La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb selon le premier aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites AB, BC, CD, DE, EF, et FA dans la figure 1.

La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb selon le deuxième aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites AB, BG, GI, IE, EF et FA pour $0.05 \le X_{Nb} \le 0.5$ ou les domaines entourés par les droites GH, HD, DI et IG pour $0.5 < X_{Nb}$.

La figure 2 est un graphique présentant une gamme de recuits préférés pour produire un gainage en alliage de Zr contenant Nb/Ta pour du combustible de réacteur nucléaire. L'alliage de Zr contenant Nb/Ta possède une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, 0,01 à 0,1 % de Ta, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins. Dans la figure 2, l'axe horizontal indique $\log \Sigma$ et l'axe vertical indique la concentration totale en Nb et en Ta (X_{ND+Ta}) . On fixe les coordonnées des points J, K, L, M, N, O, P, Q, et R de la manière suivante:

 $J(log\Sigma Ai = -15, X_{Nb+Ta} = 0,05)$

 $K(log\Sigma Ai = -15, X_{Nb+Ta} = 0,2)$

 $L(log\Sigma Ai = -18, X_{Nb+Ta} = 1,0)$

 $M(log\Sigma Ai = -20, X_{Nb+Ta} = 1,0)$

 $N(\log \Sigma Ai = -20, X_{Nb+Ta} = 0,2)$

 $O(log\Sigma Ai = -18,5, X_{Nb+Ta} = 0,05)$

 $P(log\Sigma Ai = -18, X_{Nb+Ta} = 0,5)$

 $Q(log\Sigma Ai = -19, X_{Nb+Ta} = 1,0)$ et

 $R(log\Sigma Ai = -20, X_{Nb+Ta} = 0,5)$

35 La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb/Ta selon le

5

10

15

20

25

troisième aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites JK, KL, LM, MN, NO, et OJ dans la figure 2.

La gamme de reçuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb/Ta selon le quatrième aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites JK, KP, PR, RN, RN et OJ pour $0,05 \le X_{\text{Nb+Ta}} \le 0,5$ ou les domaines entourés par les droites PQ, QM, MR et RP pour $0,5 < X_{\text{Nb+Ta}}$.

10 les modes de réalisation particulièrement préférés du procédé pour fabriquer le gainage en alliage de Zr selon la présente invention, en satisfaisant les conditions de recuit indiquées dans la figure 1 ou la figure 2, le recuit avant le laminage à froid se réalise dans un intervalle de températures compris entre environ 650°C et environ 770°C pendant une durée courte de manière significative de 1 à 10 minutes, puis on trempe le gainage avec de l'argon gazeux. Pour réaliser un tel recuit, introduit un volume réduit de gainage dans un récipient que l'on maintient essentiellement à une température élevée donnée pour chauffer rapidement le gainage puis on introduit de l'argon gazeux de grande pureté dans le récipient pour refroidir rapidement le gainage.

On décrit à présent les motifs de limitation de la gamme de composition de l'alliage de Zr selon la présente invention.

(A) Sn

L'étain (Sn) améliore la résistance de l'alliage 30 lorsque sa teneur est de 0,2 % ou plus. D'autre part, la résistance à la corrosion de l'alliage diminue de manière significative lorsque la teneur est supérieure à 1,7 %. Ainsi, la teneur en Sn est fixée entre 0,2 et 1,7 %.

35 (B) Fe et Cr

Une combinaison de ces composants contribue à améliorer la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage de l'alliage lorsque la teneur en Fe est de 0,18 % ou plus et que la teneur en Cr est de 0,07 % ou plus. Toutefois, la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en Fe est supérieure à 0,6 % et que la teneur en Cr est supérieure à 0,4 %. Ainsi, la teneur en Fe est fixée entre 0,18 et 0,6 % et la teneur en Cr est fixée entre 0,07 et 0,4 %.

10 (C) Nb et Ta

20

Ces composants contribuent à améliorer davantage la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage de l'alliage lorsque la teneur en Nb est de 0,05 % ou plus ou que la teneur en Ta est de 0,01 % ou plus.

Toutefois, la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en Nb est supérieure à 1,0 % et que la teneur en Ta est supérieure à 0,1 %. Ainsi, la teneur en Nb est fixée entre 0,05 et 1,0 %, et la teneur en Ta est fixée entre 0,01 et 0,1 %.

L'azote (N) est un composant nuisible de manière significative et il détériore la résistance à la corrosion de l'alliage. Puisque la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en N est supérieure à 60 ppm, la limite supérieure de la teneur en N est fixée à 60 ppm.

(D)N en tant qu'impureté accidentelle

On va à présent décrire en de plus amples détails le procédé pour fabriquer le gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire selon la présente invention en se basant sur ce qui suit.

EXEMPLES

On a préparé de la manière suivante des lingots d'alliage de Zr de 1 à 64 ayant des compositions indiquées dans les tableaux 1 à 6. On a mélangé une 35 éponge de Zr ayant une pureté de 99,8 % et Sn, Fe, Cr, Nb et Ta granulaire ayant chacun une pureté de 99,9 % ou

plus en se basant sur les compositions pour former des électrodes. On a fondu les électrodes dans un four à arc sous vide du type à électrode consommable en vue de former des lingots d'alliage de Zr.

										
	Tableau 1									
			Composition (% en poids)							
			(Complément: Zr et impuretés							
Туре			,	accident	elles)		_			
		Sn	Fe	Cr) YL	j 	N			
		511 Fe			Nb	Ta	(ppm)			
	1	1,13	0,22	0,11	0,053	_	32			
	2	1,02	0,22	0,10	0,11	_	29			
	3	1,66	0,21	0,11	0,21	_	25			
	4	1,21	0,21	0,11	0,22	_	30			
Lingot en	5	0,95	0,183	0,11	0,21	_	34			
alliage	6	0,97	0,37	0,11	0,20	_	28			
Zr	7	0,99	0,58	0,11	0,19	_	31			
	8	1,01	0,21	0,075	0,20	_	26			
	9	0,92	0,21	0,20	0,22	_	33			
	10	0,97	0,21	0,38	0,21	_	29			
	11	0,98	0,44	0,23	0,22	-	30			

Tableau 2									
!			Composition (% en poids)						
m		(Complé	ment: Zr	et impu	retés ad	cciden	telles)		
Туре		C	Fe	Cr) N/h	m-	N		
		Sn	re		Nb	Ta	(ppm)		
	12	0,94	0,58	0,39	0,20	_	35		
į	13	0,75	0,20	0,10	0,19		32		
	14	0,49	0,187	0,11	0,22	_	33		
	15	0,49	0,39	0,11	0,21	_	27		
Lingot en	16	0,49	0,57	0,11	0,19	_	41		
alliage	17	0,49	0,21	0,078	0,20	-	30		
Zr	18	0,49	0,21	0,22	0,21	_	55		
	19	0,49	0,21	0,39	0,20		28		
	20	0,49	0,41	0,22	0,20	_	25		
	21	0,49	0,58	0,38	0,22	i -	31		
	22	0,24	0,21	0,11	0,20	-	34		

Tableau 3										
		Composition (% en poids)								
		((Complément: Zr et impuretés							
Type			ac	cidentell	es)					
		Sn	Fe	Cr	Nb	Ta	И			
				<u> </u>			(ppm)			
	23	0,85	0,20	0,09	0,36		26			
	24	0,77	0,184	0,11	0,49		33			
	25	0,81	0,38	0,11	0,48	_	29			
	26	0,80	0,57	0,11	0,47	<u> </u>	30			
	27	0,80	0,19	0,075	0,49	_	57			
Lingot en	28	0,79	0,19	0,20	0,48		40			
alliage Zr	29	0,77	0,19	0,36	0,49	<u> </u>	31			
	30	0,78	0,41	0,20	0,47	_	28			
	31	0,81	0,58	0,37	0,49		33			
	32	0,49	0,20	0,11	0,49		30			
	33	0,21	0,183	0,11	0,48	_	28			

Tableau 4									
Type	(Composition (% en poids) (Complément: Zr et impuretés accidentelles)							
		Sn	Fe	Cr	Nb	Ta	N (ppm)		
	34	0,22	0,38	0,11	0,49	-	27		
	35	0,20	0,57	0,11	0,48	_	31		
	36	0,21	0,20	0,076	0,49	_	30		
	37	0,22	0,20	0,19	0,49	_	35		
Tinaat on	38	0,23	0,20	0,38	0,48	-	27		
Lingot en alliage Zr	39	0,21	0,40	0,21	0,49	_	29		
alliage Zi	40	0,22	0,59	0,38	0,49	_	32		
	41	0,77	0,21	0,11	0,75		28		
	42	0,52	0,21	0,11	0,75		27		
	43	1,01	0,19	0,10	0,98		33		
	44	0,23	0,19	0,10	0,99	_	35		

		7	ableau	5							
		Composition (% en poids)									
		(Complément: Zr et impuretés									
Туре			accidentelles)								
		_		C	Nb	Ta	И				
		Sn	Fe	Cr	dn	14	(ppm)				
	45	1,15	0,21	0,10	0,051	0,013	25				
	46	1,65	0,20	0,10	0,15	0,06	29				
	47	0,95	0,183	0,11	0,16	0,05	28				
	48	0,97	0,38	0,12	0,12	0,09	35				
	49	0,97	0,57	0,09	0,18	0,02	31				
Lingot en	50	0,99	0,20	0,074	0,15	0,05	56				
alliage Zr	51	1,01	0,20	0,19	0,13	0,08	45				
	52	0,96	0,21	0,39	0,17	0,02	34				
	53	0,98	0,43	0,21	0,14	0,06	27				
	54	0,97	0,59	0,38	0,11	0,09	30				
	55	0,25	0,20	0,10	0,15	0,05	31				

		<u> </u>	rableau	6					
		Composition (% en poids)							
	(Complément: Zr et impuretés								
Type				acciden	telles)				
	Sn	Fe	Cr	Nb	Та	N			
						(ppm)			
	56	0,79	0,182	0,11	0,48	0,01	28		
	57	0,77	0,37	0,12	0,43	0,05	26		
	58	0,81	0,58	0,12	0,41	0,08	33		
Lingot en	59	0,80	0,20	0,073	0,47	0,02	52		
alliage Zr	60	0,79	0,21	0,21	0,44	0,05	28		
	61	0,80	0,20	0,37	0,40	0,08	40		
i	62	0,78	0,43	0,19	0,45	0,03	29		
	63	0,79	0,57	0,36	0,43	0,06	30		
	64	0,26	0,20	0,11	0,93	0,05	32		

EXEMPLE 1

On a fait subir un forgeage à 1 010°C à des 1 lingots d'alliage de Zr, 1 à 64, indiqués dans les tableaux 1 à 6, afin de décomposer la structure de la coulée, à un chauffage à 1 010°C, à une trempe avec de l'eau pour un traitement thermique en solution, à un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, une extrusion à chaud à 600°C, un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, trois cycles de recuit et de laminage à froid dans les conditions de logΣAi indiquées dans les tableaux 7 à 12 et un recuit final de relaxation des contraintes à 450°C pendant 2 heures. On a produit des tubes de gainage en alliage de Zr, 1 à 64, ayant une épaisseur de 0,5 mm. On a soumis les tubes de gainage résultants aux tests suivants.

Test de corrosion

On a découpé une épreuve d'essai ayant une longueur de 50 mm à partir de chaque gainage en alliage de Zr, on l'a lavée avec de l'acétone et on l'a immergée dans de l'eau pure d'une tension de vapeur saturée de 190 atmosphères à 360°C pendant 900 jours dans un autoclave statique. On indique dans les tableaux 7 à 12 le poids accru de chaque éprouvette par unité de surface [(poids après les essais — poids avant les essais)/ surface de l'éprouvette] (unité: mg/dm²).

Essai de fluage

On a mis sous pression de manière interne chaque éprouvette d'essai provenant du gainage en alliage de Zr et on l'a maintenue à une température de 400°C pendant 15 jours sous une contrainte de 12 kg/mm². On a mesuré le diamètre extérieur de l'éprouvette avec un calibre à laser pour diamètre. On a calculé la déformation de fluage (en %) à partir de l'augmentation du diamètre externe en utilisant l'équation [(diamètre extérieur après les essais - diamètre extérieur avant les essais)/diamètre extérieur avant les essais] x 100. On indique également les résultats dans les tableaux 7 à 12.

EXEMPLE 2

On a soumis les lingots en alliage de Zr, 1 à 64, indiqués dans les tableaux 1 à 6, à un forgeage à 1 010°C afin de décomposer la structure de la coulée, à un chauffage à 1 010°C, à une trempe avec de l'eau pour un traitement thermique en solution, à un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, à une extrusion à chaud à 600°C, à un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, à deux cycles de recuit et de laminage à froid dans les conditions de log Ai indiquées dans les tableaux 13 à 21, à un chauffage et à un refroidissement avec de l'argon gazeux dans les conditions indiquées dans les tableaux 13 à 21,

à un laminage final à froid puis à un recuit final de relaxation des contraintes dans les mêmes conditions que dans l'exemple 1. On a produit des tubes de gainage en alliage de Zr, 65 à 128, ayant une épaisseur de 0,5 mm.

5 On a soumis les tubes de gainage résultants à l'essai de corrosion et à l'essai de fluage comme dans l'exemple 1. On indique également les résultats dans les tableaux 13 à 21.

Tel que décrit ci-dessus, le gainage en alliage 10 de Zr obtenu par le procédé selon la présente invention possède une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, en conséquence on peut l'utiliser comme gainage de combustible nucléaire pendant une longue durée.

	Tableau 7								
Type		Lingot en alliage de Zr	ΣAi	Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	Déformation de fluage après l'essai de fluage %				
	1	1	-16,8	294	2,66				
	2	2	-16,8	198	2,49				
	3	3	-16,0	234	1,88				
	4	4	-15,1	233	1,71				
Procédé	5	5	-17,9	185	2,93				
de cette	6	6	-16,8	171	2,44				
invention	7	7	-16,0	171	1,86				
<u> </u>	8	8	-15,1	202	1,82				
	9	9	-17,9	189	2,85				
	10	10	-16,8	191	2,40				
: [: !	11	11	-16,0	189	1,86				

	1	,	Table	eau 8	
	į			Augmentation de	
			-	poids par unité	Déformation
		Lingot		de surface de	de fluage
Type		en	ΣAi	l'éprouvette	après
1466		alliage		d'essai après	l'essai de
		de Zr		l'essai de	fluage
				corrosion	ક
				(mg/dm²)	
	12	12	-15,1	206	1,65
	13	13	-16,8	162	2,62
	14	14	-16,0	150	2,22
	15	15	-16,8	141	2,67
Procédé	16	16	-16,8	135	2,63
de cette	17	17	-16,8	149	2,71
invention	18	18	-16,8	159	2,66
	19	19	-16,8	163	2,64
	20	20	-16,8	151	2,61
	21	21	-17,9	152	2,94
	22	22	-16,0	133	2,33

<u> </u>	Tableau 9								
1				Augmentation de					
Ä	}		-	poids par unité	Déformation				
		Lingot		de surface de	de fluage				
Туре	<u> </u> 	en	ΣΑί	l'éprouvette	après				
		alliage		d'essai après	l'essai de				
		de Zr		l'essai de	fluage				
İ				corrosion	8				
<u> </u>				(mg/dm²)					
	23	23	-17,9	246	2,84				
	24	24	-17,9	251	2,69				
	25	25	-17,9	243	2,63				
	26	26	-17,9	240	2,57				
Procédé	27	27	-17,9	255	2,73				
de cette	28	28	-17,9	262	2,66				
invention	29	29	-17,9	267	2,61				
	30	30	-17,9	249	2,60				
	31	31	-17,9	266	2,54				
	32	32	-17,9	234	2,75				
	33	33	-17,9	212	2,81				

	Tableau 10								
				Augmentation de					
			-	poids par unité	Déformation				
		Lingot		de surface de	de fluage				
m mo		en	ΣAi	l'éprouvette	après				
Type		alliage	ZAI.	d'essai après	l'essai de				
		de Zr		l'essai de	fluage				
		A.		corrosion	8				
				(mg/dm²)					
	34	34	-17,9	208	2,77				
	35	35	-17,9	202	2,77				
	36	36	-17,9	216	2,80				
	37	37	-17,9	221	2,77				
Procédé	38	38	-17,9	223	2,74				
de cette	39	39	-17,9	204	2,79				
invention	40	40	-17,9	210	2,77				
	41	41	-17,9	291	2,66				
	42	42	-17,9	290	2,72				
	43	43	-18,8	294	2,50				
	44	44	-18,8	250	2,72				

		_	Table	au 11				
				Augmentation de				
			-	poids par unité	Déformation			
		Lingot		de surface de	de fluage			
Туре		en	ΣAi	l'éprouvette	apres			
1100		alliage	24.12	d'essai après	l'essai de			
		de Zr		l'essai de	fluage			
		! :		corrosion	8			
		<u> </u>		(mg/dm²)				
	45	45	-16,8	284	2,65			
	46	46	-17,9	241	2,65			
	47	47	-17,9	180	2,89			
	48	48	-17,9	177	2,83			
Procédé	49	49	-17,9	171	2,81			
de cette	50	50	-17,9	180	2,91			
invention	51	51	-17,9	193	2,91			
	52	52	-17,9	201	2,82			
	53	53	-17,9	192	2,85			
	54	54	-17,9	188	2,81			
	55	55	-16,8	129	2,83			

Tableau 12								
			10020	Augmentation de				
					D:5			
			-	poids par unité	Déformation			
		Lingot		de surface de	de fluage			
Туре		en	ΣAi	l'éprouvette	après			
		alliage	ZAI	d'essai après	l'essai de			
		de Zr		l'essai de	fluage			
				corrosion	8			
				(mg/dm²)				
	56	56	-17,9	248	2,72			
	57	57	-17,9	233	2,72			
	58	58	-17,9	252	2,61			
Procédé	59	59	-17,9	261	2,81			
de cette	60	60	-17,9	260	2,67			
invention	61	61	-17,9	264	2,71			
	62	62	-17,9	252	2,75			
	63	63	-17,9	281	2,51			
	64	64	-17,9	248	2,70			

			_	Tableau 1	3		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
1				Condition d	le recuit	Augmentation	
 - 				avant le lamin	age final à	de poids par	
		Lingot		froic	<u> </u>	unité de	Déformation
	i	en				surface de	de fluage
Type		alliage	ΣΑί	Température	Durée de	l'éprouvette	après l'essai
		de Zr		de chauffage	maintien	d'essai après	de fluage
			!	_	(°C) (min)	l'essai de	%
				(0)		corrosion	
						(mg/dm²)	
	65	11	-17,8	720	5,2	289	2,98
	66	2	-17,8	725	3,0	226	2,93
Procédé	67	3	-19,5	670	2,2	291	2,83
de cette	68	4	-18,8	675	5,0	239	2,85
invention	69	5	-18,8	680	6,1	220	2,91
	70	6	-18,8	700	3,0	212	2,84
	71	7	-18,8	720	1,2	207	2,81

Tableau 14												
Туре		Lingot en alliage		Condition de re		Augmentation de poids par						
				Température de chauffage	Durée de maintien							
		de Zr		(°C)	(min)	l'essai de corrosion (mg/dm²)	%					
		0	-17,8	730	2,5	188	2,88					
	72	8	-17,8	690	8,3	191	2,89					
م م م م م	73 74	10	-18,8	660	5,5	234	2,82					
Procédé de cette	75	11	-17,8	740	2,3	192	2,84					
invention	76	12	-17,8	770	1,0	194	2,88					
Mediaon	77	13	-17,8		9,5	175	2,99					
	78	14	-17,8	725	3,0	159	2,98					

			·	Tableau	15		
į				Condition de le laminage fi		Augmentation de poids par	
Туре	Lingot en alliage de Zr		ΣΑί	Température de chauffage (°C)	Durée de maintien (min)	unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	Déformation de fluage après l'essai de fluage %
	79	15	-17,8	720	5,5	143	2,94
	80	16	-17,8	760	1,8	133	2,92
Procédé	81	17	-17,8	700	9,8	155	2,97
de cette	82	18	-18,8	680	4,5	194	2,93
invention	83	19	-17,8	730	5,0	169	2,99
	84	20	-17,8	735	4,5	155	2,98
	85	21	-17,9	720	5,0	161	2,93

7.1140													
	Tableau 16												
				Condition de r le laminage fi		Augmentation de poids par							
Туре		Lingot en alliage de Zr	ΣΑί	Température de chauffage (°C)	Durée de maintien (min)	unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	Déformation de fluage après l'essai de fluage %						
	86	22	-17,8	720	5,0	133	2,97						
	87	23	-17,8	700	8,8	243	2,85						
Procédé	88	24	-17,8	710	8,0	260	2,72						
de cette	89	25	-17,8	730	3,2	251	2,64						
invention	90	26	-17,8	725	3,5	250	2,71						
	91	27	-17,8	760	1,0	259	2,77						
	92	28	-17,8	750	1,2	277	2,75						

	Tableau 17												
Type		Lingot en alliage de Zr	ΣΑί	Condition d avant le lamin froid Température de chauffage (°C)	age final à	Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion	Déformation de fluage après l'essai de fluage %						
	93	29	-17,8	710	5,0	(mg/dm²) 275	2,67						
	94	30	-17,8	700	9,0	266	2,71						
Procédé	95	31	-17,8	730	2,5	281	2,73						
de cette	96	32	-17,8	720	5,0	241	2,81						
invention	97	33	-17,8	740	1,1	222	2,88						
	98	34	-17,8	730	2,6	223	2,82						
	99	35	-17,8	720	4,8	201	2,89						

30.												
Tableau 18												
				Condition de r		Augmentation						
			1	avant le lamin	age final	de poids par						
				à froi	<u>t</u>	unité de	Déformation					
		Lingot				surface de	de fluage					
Type	Ì	en	ΣΑί		.	l'éprouvette	après l'essai					
1300		alliage		Température	Durée de	d'essai après	de fluage					
		de Zr		de chauffage	maintien	l'essai de	%					
				(°C)	(min)	corrosion						
				1		(mg/dm²)	!					
	100	36	-17,8	725	3,3	223	2,81					
	101	37	-17,8	710	5,0	225	2,82					
Procédé	102	38	-17,8	700	7,5	220	2,79					
de cette	103	39	-17,8	740	1,2	207	2,81					
invention	104	40	-17,8	720	4,0	221	2,83					
MYCHOON	105		-18,8	650	8,1	282	2,94					
	106	42	-18,8	680	2,0	249	2,85					

	Tableau 19											
				Condition de recuit avant le laminage final à		Déformation						
Туре	Type Lingot en alliage de Zr		ΣΑί	Température de chauffage (°C)	Durée de maintien (min)	unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	de fluage après l'essai de fluage %					
ļ.	107	43	-18,8	690	1,0	299	2,82					
	108	44	-18,8	660	5,0	262	2,91					
Procédé	109	45	-17,8	720	4,0	283	2,94					
de cette	110	46	-17,8	725	3,0	242	2,66					
invention	111	47	-17,8	730	2,5	182	2,91					
	112	48	-17,8	710	7,0	174	2,81					
	113	49	-17,8	730	3,0	176	2,79					

				Tableau 20	0		
				Condition d avant le lamina froid	age final à	Augmentation de poids par unité de	Déformation
Type	Type alliage de Zr		ΣΑί	Température de chauffage (°C)	Durée de maintien (min)	surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	de fluage après l'essai de fluage %
	114	50	-17,8	735	2,0	182	2,72
	115	51	-17,8	710	5,2	188	2,88
Procédé	116	52	-17,8	715	4,5	201	2,76
de cette	117	53	-17,8	720	3,8	197	2,79
invention	118	54	-17,8	700	9,0	189	2,84
	119	55	-17,8	705	5,5	142	2,98
	120	56	-17,8	725	2,0	247	2,76

				Tableau 2	1		
					Condition de recuit avant le laminage final à		Déformation
Туре		Lingot en alliage de Zr	ΣΑί	Température de chauffage (°C)	Durée de	unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm²)	Déformation de fluage après l'essai de fluage %
	121	57	-17,8	730	2,0	232	2,62
	122	58	-18,8	670	3,5	190	2,81
Procédé	123	59	-17,8	695	9,0	255	2,72
	124	60	-17,8	715	4,0	249	2,79
de cette invention	125	61	-17,8	730	2,2	272	2,66
	126	62	-17,8	720	3,0	272	2,73
	127	63	-17,8	725	2,6	287	2,75
	128	64	-18,8	680	2,5	267	2,94

REVENDICATIONS

1. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage combustible de réacteur nucléaire pour un comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à solution, traitement thermique en extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en 10 tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣAi représenté par ΣAi= Σti.exp(-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le log\Sigma Ai \le -15$, et

20 $-18-10.X_{ND} \le log\Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{ND}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

25 Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 X_{Nb} représente la concentration en Nb ($\mbox{\$}$ en poids).

- 2. Procédé selon la revendication 1 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.
- 3. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage 35 de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire

comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550° C et environ 850° C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé Σ Ai représenté par Σ Ai= Σ ti.exp(-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et $-18-10.X_{Nb} \le \log \Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

20 ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en 25 poids) et

le paramètre de recuit cumulé ΣAi vérifie de plus les relations:

lorsque $0.05 \le X_{Nb} \le 0.5$,

-20 ≤ log Σ Ai ≤ -15, et

 $-18-10.X_{Nb} \le log\Sigma Ai \le -15-10.(X_{Nb}-0.2)$, ou lorsque 0.5 $< X_{Nb}$,

 $-20 \le log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb}-0.5).$

4. Procédé selon la revendication 3 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans 35 un intervalle de températures comprises entre environ

10

15

650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 Minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

5. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage un combustible de réacteur pour Zr comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à traitement thermique en solution, un extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et 0,01 à 0,1 % de Ta impuretés et des étant Zr complément le accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celuici; dans lequel 15

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣAi représenté par $\Sigma Ai=$ Σ ti.exp(-40 000/Ti) satisfait les relations:

 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{Nb+Ta} \le log\Sigma Ai \le -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

ti représente la durée du recuit (en heures) 25 pour le ième recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 X_{Nb+Ta} représente la concentration en Nb et Ta (% 30 en poids).

6. Procédé selon la revendication 5 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 Minutes sulvi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

10

20

7. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à un traitement thermique en solution, extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et 0,01 à 0,1 % de Ta étant le complément Zr et des impuretés 10 accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celuic1; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣAi représenté par $\Sigma \text{Ai} = \Sigma \text{ti.exp}(-40~000/\text{Ti})$ satisfait les relations:

 $-20 \le log\Sigma Ai \le -15$, et

20 $-18-10.X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma Ai \leq -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$

dans lesquelles Ai représente le paramètre de recuit pour le ième recuit,

ti représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit,

25 Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

 $X_{\text{ND+Ta}}$ représente la concentration en Nb et Ta (% en poids) et

le paramètre de recuit cumulé ΣAi vérifie de 30 plus les relations:

lorsque $0.05 \le X_{Nb+Ta} \le 0.5$,

 $-20 \le log\Sigma Ai \le -15$, et

 $-18-10.X_{\text{Nb+Ta}} \leq \text{log}\Sigma\text{Ai} \leq -15-10.(X_{\text{Nb+Ta}}-0.2)$, ou

lorsque $0.5 < X_{Nb+Ta}$,

35 $-20 \le \log \Sigma Ai \le -18-2.(X_{Nb+Ta}-0.5).$

- 8. Procédé selon la revendication 7 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 Minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.
- 9. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication 1.
- 10. Un gainage en alliage de Zr pour un 10 combustible de réaction nucléaire selon la revendication 2.
 - 11. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication 3.
- 15 12. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication 4.
- 13. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication 20 5.
 - 14. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication 6.

